

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-343659

(43)Date of publication of application : 29.11.2002

(51)Int.Cl. H01F 41/02

B22F 3/00

C22C 33/02

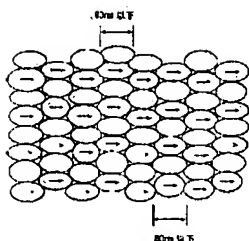
C22C 38/00

H01F 1/08

(21)Application number : 2001- (71)Applicant : NISSAN MOTOR CO LTD
147831

(22)Date of filing : 17.05.2001 (72)Inventor : SHIMADA MUNEKATSU
ONO HIDEAKI

(54) RARE EARTH MAGNET ALLOY AND ANISOTROPIC EXCHANGE
SPRING MAGNET USING THE SAME



(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for simply manufacturing an anisotropic exchange spring magnet, having superior magnet characteristics.

SOLUTION: This manufacturing method of the anisotropic exchange spring magnet includes a step for grinding an rare earth magnet alloy, to size being smaller than that of a partial anisotropy region to obtain magnet powder, a step for forming the magnet power in a magnetic field to obtain a green compact, and a step for allowing the green compact to be subjected to discharge plasma sintering to obtain a bulk magnet. In an NbFeB-based rare earth magnet alloy, in which hard and soft magnetic phases are mixed, each size of the hard and soft magnetic phases is set to 80 nm or smaller, and at the same time, the size of the partial anisotropic region, where the direction of the axis of easy magnetization in the hard magnetic phase is equal is set to 0.1 μm or larger.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 30.01.2003

[Date of sending the examiner's
decision of rejection] 26.07.2005

[Kind of final disposal of application
other than the examiner's decision of
rejection or application converted
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection] 2005-16389

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection] 25.08.2005

[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The rare earth magnet alloy characterized by being the NdFeB system rare earth magnet alloy with which a hard magnetism phase and a soft magnetism phase come to be intermingled, and for the magnitude of said hard magnetism phase and said soft magnetism phase being 80nm or less, respectively, and the partial different direction-ized area size to which the direction of the easy axis of a hard magnetism phase is equal being 0.1 micrometers or more.

[Claim 2] a presentation -- following type (1): -- [Formula 1]

$$\text{Nd}_x\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{B}_y\text{V}_z \quad (1)$$

The rare earth magnet alloy according to claim 1 characterized by (being the

inside of a formula, $x=4-10$, $y=4-7$, and $z=0-2$).

[Claim 3] The rare earth magnet alloy according to claim 2 characterized by coming to permute 0.01 - 80atom% of Nd by Pr.

[Claim 4] The rare earth magnet alloy according to claim 2 or 3 characterized by coming to permute 0.01 - 10atom% of Nd by Dy or Tb.

[Claim 5] A rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 2-4 characterized by coming to permute 0.01 - 30atom% of Fe by Co.

[Claim 6] A rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 2-5 to which Fe or Co is characterized by coming to permute by one or more 0.1 - 3atom% sorts of aluminum, Mo, Zr, Ti, Sn, Cu, Ga, or Nb to a total presentation.

[Claim 7] A rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 1-6 characterized by the magnitude of said hard magnetism phase and said soft magnetism phase being 60nm or less.

[Claim 8] the magnet which ground said magnet alloy in magnitude of 25 micrometers or less, and carried out magnetic field orientation all over the magnetic field of 10kOe -- being related -- following type (2): -- [Equation 1]

$$J_{s1} = \frac{\text{磁場配向方向の磁化の大きさ}}{\text{磁場配向方向に垂直な方向の磁化の大きさ}} \quad (2)$$

A rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 1-7 which come out and are characterized by the degree of formation of the different direction in 16kOe(s) expressed being 1.1 or more.

[Claim 9] How to manufacture the rare earth magnet alloy of a publication in any 1 term of claims 1-8 from a rare earth magnet ingot using the strip cast method or a super-quenching method.

[Claim 10] How to manufacture the rare earth magnet alloy according to claim 9 characterized by the thickness of the crystalline substance alloy thin band manufactured by said strip cast method or the super-quenching method being 10-300 micrometers.

[Claim 11] the phase of grinding a rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 1-8 below to partial different direction-ized area size, and obtaining

magnet powder, the phase of fabricating said magnet powder among a magnetic field, and obtaining a green compact, and the phase of carrying out pressure sintering of said green compact in the discharge plasma, and obtaining a bulk magnet -- since -- the manufacture approach of the becoming anisotropy exchange spring magnet.

[Claim 12] It is the manufacture approach according to claim 11 characterized by performing grinding of said rare earth magnet alloy with a wet ball mill or a dry type ball mill.

[Claim 13] The manufacture approach according to claim 11 or 12 that the consistency of said bulk magnet is characterized by being 95% or more of the true density of said rare earth magnet alloy.

[Claim 14] The motor which comes to prepare for any 1 term of claims 11-13 the anisotropy exchange spring magnet obtained by the manufacture approach of a publication.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] Especially this invention relates to the approach of manufacturing the anisotropy exchange spring magnet which has outstanding magnetic properties simple, about an anisotropy exchange spring magnet and its manufacture approach.

[0002]

[Description of the Prior Art] The Nd-Fe-B system permanent magnet which has high magnetic properties as a magnet used for a motor etc. is used widely, and it is manufactured using the solution process (M. Sagawa et al and Japanese Journal of Applied Physics26 (1987) 785 reference) or the quenching method (R. W.Lee, Applied Physics Letter46 (1985) 790 reference). Moreover, HDDR processing (T. Takeshita et al, Proc.10th Int.Workshop - Rare Earth Magnetsand Their Applications, Tokyo, 399 (1989) reference) is developed, and the improvement in coercive force by the atomization of crystal grain is possible. An anisotropy can be given to the powder which adds alloying elements, such as Co, Ga, Zr, and Hf, and is obtained at this time. Development of the Nd-Fe-B system permanent magnet which has outstanding magnetic properties by such ED was attained.

[0003] However, a Nd-Fe-B system permanent magnet is approaching theoretical threshold value about a magnet property. For this reason, it asks for development of the next-generation magnet which has the further high performance, and the exchange spring magnet attracts attention in recent years (E. others [3588 / F.Kneller and R.Hawig and / IEEE Transaction Magnetics27 (1991)]). A hard magnetism phase (it is hereafter indicated also as a hard phase) and a soft magnetism phase (it is hereafter indicated also as a soft phase) consist of an organization which did detailed distribution to dozens of nm order, and magnetization of a bi-phase is not [magnetization of a soft phase] easily reversed by the exchange interaction with Lanthanum with an epilogue, and an exchange spring magnet is a magnet served like a single hard phase as a whole, and is also called a nano composite magnet. If-izing can be carried out [anisotropy] in $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}\text{N}_3/\text{Fe-Co}$, it is reported by

the theory top that the value of (BH) max=137MGOe can be acquired (R.

Skomski and J.M.D. Coey, Physical Review B48 (1993) 15812).

[0004] It is R. Coehoorn et al, Journal de Physique The manufacture approach of a Nd₂Fe₁₄B/Fe₃B system exchange spring magnet is indicated by 49(1988) C 8-669. Moreover, JP,7-173501,A, JP,7-176417,A,

L. Withanawasamet al, Journal of Magnetism and Magnetic Materials The manufacture approach of a Nd₂Fe₁₄B/Fe system exchange spring magnet is indicated by 124 (1993)L1.

[0005] however, the melt span method used in the above-mentioned reference and mechanical alloying (MA) -- since crystal orientation cannot be arranged, only an isotropic exchange spring magnet is obtained, but harnessing the property of an exchange spring magnet in law, is fully able to be finished

[0006] As the manufacture approach of an anisotropy exchange spring magnet, the approach which the approach of carrying out hot working of the quenching thin band alloy in which a hard phase and a soft phase carry out [the approach of carrying out heating crystallization of the Nd-Fe-B amorphous alloy all over a strong magnetic field] a detailed distribution deposit at JP,11-97222,A carries out the rapid temperature up of the quenching thin band to JP,2000-235909,A, and carries out 1 shaft deformation between direct ** is indicated by JP,11-8109,A, respectively.

[0007] However, it asked for development of the manufacture approach of a simpler anisotropy exchange spring magnet with a magnet property inadequate [the anisotropy exchange spring magnet manufactured by the above-mentioned approach] and.

[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention aims at offering the approach of manufacturing the anisotropy exchange spring magnet which has the outstanding magnet property simple in view of the above-mentioned matter.

[0009]

[Means for Solving the Problem] By adopting the process which grinds this as a

start ingredient using the rare earth magnet alloy to which the hard phase and the soft phase distributed minutely, and the direction of the easy axis of a hard phase is partially equal to size smaller than the field which had complete set of hard phase although it is isotropic as the whole alloy, this invention persons establish a header and terms and conditions for the above-mentioned technical problem being solvable, and complete this invention. That is, when such a magnet alloy is ground even in size smaller than the partial different direction-ized field which has had complete set of direction of an easy axis and is fabricated among a magnetic field, the green compact which has an anisotropy is obtained. By sintering this on the conditions on which a crystalline substance does not ***** , the anisotropy exchange spring magnet which has the outstanding magnet property can be obtained easily. The concrete configuration of this invention is as follows.

[0010] Invention according to claim 1 is a rare earth magnet alloy characterized by being the NdFeB system rare earth magnet alloy with which a hard magnetism phase and a soft magnetism phase come to be intermingled, and for the magnitude of said hard magnetism phase and said soft magnetism phase being 80nm or less, respectively, and the partial different direction-ized area size to which the direction of the easy axis of a hard magnetism phase is equal being 0.1 micrometers or more.

[0011] For invention according to claim 2, a presentation is following type (1):

[0012].

[Formula 2]



[0013] It is the rare earth magnet alloy according to claim 1 characterized by (being the inside of a formula, $x=4-10$, $y=4-7$, and $z=0-2$).

[0014] Invention according to claim 3 is a rare earth magnet alloy according to claim 2 characterized by coming to permute 0.01 - 80atom% of Nd by Pr.

[0015] Invention according to claim 4 is a rare earth magnet alloy according to

claim 2 or 3 characterized by coming to permute 0.01 - 10atom% of Nd by Dy or Tb.

[0016] Invention according to claim 5 is a rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 2-4 characterized by coming to permute 0.01 - 30atom% of Fe by Co.

[0017] Invention according to claim 6 is a rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 2-5 to which Fe or Co is characterized by coming to permute by one or more 0.1 - 3atom% sorts of aluminum, Mo, Zr, Ti, Sn, Cu, Ga, or Nb to a total presentation.

[0018] Invention according to claim 7 is a rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 1-6 characterized by the magnitude of said hard magnetism phase and said software magnetism phase being 60nm or less.

[0019] Invention according to claim 8 grinds said magnet alloy in magnitude of 25 micrometers or less, relates to the magnet which carried out magnetic field orientation all over the magnetic field of 10kOe, and is following formula (2):

[0020].

[Equation 2]

$$J_{s1} = \frac{\text{磁場配向方向の磁化の大きさ}}{\text{磁場配向方向に垂直な方向の磁化の大きさ}} \quad (2)$$

[0021] It is a rare earth magnet alloy given in any 1 term of claims 1-7 which come out and are characterized by the degree of formation of the different direction in 16kOe(s) expressed being 1.1 or more.

[0022] Invention according to claim 9 is the approach of manufacturing the rare earth magnet alloy of a publication in any 1 term of claims 1-8 from a rare earth magnet ingot using the strip cast method or a super-quenching method.

[0023] Invention according to claim 10 is the approach of manufacturing the rare earth magnet alloy according to claim 9 characterized by the thickness of the crystalline substance alloy thin band manufactured by said strip cast method or the super-quenching method being 10-300 micrometers.

[0024] the phase of invention according to claim 11 grinding a rare earth magnet

alloy given in any 1 term of claims 1-8 below to partial different direction-ized area size, and obtaining magnet powder, the phase of fabricating said magnet powder among a magnetic field, and obtaining a green compact, and the phase of carrying out pressure sintering of said green compact in the discharge plasma, and obtaining a bulk magnet -- since -- it is the manufacture approach of the becoming anisotropy exchange spring magnet.

[0025] It is the manufacture approach according to claim 11 characterized by invention according to claim 12 performing grinding of said rare earth magnet alloy with a wet ball mill or a dry type ball mill.

[0026] Invention according to claim 13 is the manufacture approach according to claim 11 or 12 that the consistency of said bulk magnet is characterized by being 95% or more of the true density of said rare earth magnet alloy.

[0027] Invention according to claim 14 is a motor which comes to prepare for any 1 term of claims 11-13 the anisotropy exchange spring magnet obtained by the manufacture approach of a publication.

[0028]

[Effect of the Invention] According to this invention constituted as mentioned above, the following effectiveness is done so for every claim.

[0029] If it is in invention according to claim 1, the anisotropy bulk exchange spring magnet which arranged the easy axis with the one direction can be manufactured simple. Since it is an anisotropy, an energy product is large, and the amount of rare earth metals to be used can be reduced. When the magnet which follows, for example, is applied to this invention is applied to the motor of an automobile, small and lightweight-ization of a motor can be attained, and it can contribute to the improvement in fuel consumption of an automobile, and manufacture cost reduction greatly. Moreover, the magnet excellent in the temperature characteristic can be obtained, and when it applies to the part to which elevated-temperature endurance is demanded, useful effectiveness is shown especially.

[0030] If it is in invention according to claim 2, magnetic coercive force and

productivity can be raised by making a presentation into the above-mentioned formula (1).

[0031] If it is in invention according to claim 3, coercive force and square shape nature can be raised by permuting a part of Nd by Pr, without producing the fall of a residual magnetic flux density.

[0032] If it is in invention according to claim 4, coercive force and the temperature characteristic can be raised by permuting a part of Nd by Dy or Tb, without producing the fall of a residual magnetic flux density.

[0033] If it is in invention according to claim 5, the temperature characteristic and flux density can be raised by permuting a part of Fe by Co.

[0034] If it is in invention according to claim 6, by permuting a part of Fe or Co by one or more sorts of aluminum, Mo, Zr, Ti, Sn, Cu, Ga, or Nb, atomization can be attained, as a result coercive force increase can be attained.

[0035] If it is in invention according to claim 7, the further increase of coercive force is realizable by setting magnitude of a hard magnetism phase and said software magnetism phase to 60nm or less.

[0036] If it is in invention according to claim 8, the outstanding anisotropy exchange spring magnet can be obtained by using the rare earth magnet alloy which fills the above-mentioned formula (2).

[0037] If it is in invention according to claim 9, the rare earth magnet alloy of claims 1-8 can be obtained by using the strip cast method or a super-quenching method.

[0038] If it is in invention according to claim 10, it can consider as the alloy thin band which has a detailed crystalline substance by preparing a crystalline substance alloy thin band so that thickness may be set to 10-300 micrometers.

[0039] If it is in invention according to claim 11, the bulk exchange spring magnet which has an anisotropy is obtained. Moreover, by carrying out pressure sintering in the discharge plasma, compaction of heating time and reduction of whenever [stoving temperature] can be aimed at, and the detailed grain of the crystalline substance of an exchange spring magnet is maintained. Therefore, the magnet

property of the exchange spring magnet obtained becomes what was more excellent.

[0040] If it is in invention according to claim 12, an energy product can be made suitable by making the consistency of a bulk magnet into 95% or more of the true density of the rare earth magnet alloy which is a raw material.

[0041] If it is in invention according to claim 13, by considering as the motor carrying the exchange spring magnet concerning this invention which has the outstanding magnet property, small and lightweight-ization of a motor can be attained, and the improvement in fuel consumption of a motor and manufacture cost reduction can be attained. Moreover, since it excels in elevated-temperature endurance, it has the effectiveness which was excellent on the thermal design.

[0042]

[Embodiment of the Invention] First, the magnet alloy concerning this invention is explained.

[0043] The hard phase and software phase of 80nm or less are intermingled, and, as for the NdFeB system magnet alloy concerning this invention, magnitude of a hard magnetism phase and said software magnetism phase is characterized by being 0.1 micrometers or more by the partial different direction-ized area size to which the direction of the easy axis of a hard phase is equal. The conceptual diagram of the magnet alloy concerning this invention is shown in drawing 1. An arrow head shows the direction of an easy axis, and the particle by which the hard phase is not given to the particle to which the arrow head was given to the arrow head expresses a software phase. In the actual magnet alloy, it has the structure with which the small field (this application is indicated to be also a "partial different direction-ized field") which had complete set of direction of the easy axis of a hard phase as shown in drawing 1 combined, and if it sees further on the scale of the macro which also expanded the partial different direction-ized field a little, it has a texture. That is, the field which consists of two or more partial different direction-ized fields which have the direction of the formation of the different direction of abbreviation identitas is formed. And as the whole alloy, it

has isotropy. That is, the alloy is making a configuration like the aggregate of the partial different direction-ized field which has an anisotropy. In addition, in this invention, a magnet alloy does not point out various modes, such as intermediate field which carried out coarse grinding of a crystalline substance alloy thin band and these, and it is not used especially restrictively.

[0044] The magnitude and the mixture condition of a hard phase and a soft phase can be checked using SEM, and the magnitude (it is hereafter indicated also as crystalline substance size) of a hard phase and a soft phase is defined as an overall diameter in that case. Since an exchange interaction will fall if too large, crystalline substance size needs to be 80nm or less, and it is desirable that it is 60nm or less. Although it is not limited especially concerning the lower limit of crystalline substance size and such a strong exchange interaction that it is small is obtained, if the productivity slowdown accompanying the difficulty of manufacture etc. is taken into consideration, 5nm or more is practical.

[0045] the direction of the easy axis of a hard phase -- TEM -- final -- it can check -- this application -- setting -- the direction of an easy axis -- $\leq 15^\circ$ -- when degree, it shall judge "the direction of an easy axis has gathered" Finally TEM shall also perform the check of partial different direction-ized area size, and the field where the direction of an easy axis is less than $\leq 15^\circ$ degrees in this application shall be defined as a partial different direction-ized area size. The deductive inference approach which may judge the superiority or inferiority of a magnet alloy using the substitution approach of TEM, for example, is explained in degree paragraph may be used. This invention grinds a magnet alloy to the particle below partial different direction-ized area size, and gives an anisotropy to an exchange spring magnet by using this powder. That is, when a magnet alloy is ground to the particle below partial different direction-ized area size, the magnet powder generated by grinding serves as a magnet which has an anisotropy. In addition, it is considered that it is easy to dissociate in an interface with an adjoining partial different direction-ized field on the occasion of grinding. When a magnetic field is

applied to the magnet powder which has an anisotropy, the magnetic aggregate (powdered green compact) has an anisotropy by alignment of magnet powder. Partial different direction-ized area size needs to be 0.1 micrometers or more. Although it is necessary to perform grinding of a magnet alloy below to partial different direction-ized area size, it is because it will become difficult to carry out magnetic field orientation if the magnitude of the magnet powder produced by grinding is too small. It is not limited, and especially the upper limit of partial different direction-ized area size is so desirable that it is large.

[0046] Next, the rare earth magnet alloy which is a start raw material forms the different direction partially, and how to know simple whether the property as a magnet alloy of this invention will be fulfilled is described. One is the approach of actually manufacturing a bulk magnet and presuming the existence of a partial different direction-ized field. Specifically it grinds using a ball mill, a green compact is produced with a press among a magnetic field, and it bulk-izes with discharge plasma equipment at the temperature of 800 degrees C or less, and considers as a magnet. By comparing the magnetization curve in the direction of a magnetic field of the press of this bulk magnet among a magnetic field, and a direction perpendicular to it, if extent of an anisotropy is investigated and there is an anisotropy, it will be the approach it is presumed that had the partial different direction-ized field. Another is a simpler approach. Magnet alloys (the rare earth alloy thin band produced by the strip cast method, thin band which heat-treated the amorphous ribbon and was used as the crystalline substance) are ground to 25 micrometers or less, an epoxy resin (adhesives) is mixed, it hardens all over the magnetic field of 10kOe, and the sample for oscillatory type magnetometers (VSM) is produced. The magnetization curve in the direction of a magnetic field and a direction perpendicular to it is measured in VSM, and it is following type (2): [0047].

[Equation 3]

$$J_{s1} = \frac{\text{磁場配向方向の磁化の大きさ}}{\text{磁場配向方向に垂直な方向の磁化の大きさ}} \quad (2)$$

[0048] It is the approach of coming out and presuming extent of the formation of the partial different direction from the ratio (the degree of formation of the different direction) of the magnetization in 16kOe(s) expressed. Although it is more desirable to grind a magnet alloy more finely, when the ease of the handling at the time of making it solidify and the magnitude which grinds by hand and can be sifted out using a mortar are taken into consideration, about 25 micrometers is desirable.

[0049] Especially the latter approach can demonstrate power in rare earth magnet ingredient development. Experimentally, when Js1 used 1.1 or more rare earth magnet alloys as a start ingredient, outstanding production of an anisotropy exchange spring magnet was possible. As for Js1, 1.3 or more are more desirable, and 1.5 or more are still more desirable.

[0050] As a desirable magnet presentation for obtaining an exchange spring magnet, it is following formula (1): [0051].

[Formula 3]



[0052] ***** The hard phase in this presentation is Nd₂Fe₁₄B, and that it is alpha-Fe has presumed the software phase from measurement of an X diffraction and the temperature dependence of magnetization etc.

[0053] When there are too few amounts of Nd, since reservation of the coercive force at the time of manufacturing an exchange spring magnet may become difficult, it is desirable that it is more than 4atom%. On the other hand, when many [too], the rate that a software phase occupies decreases and there is a possibility that the magnet property at the time of manufacturing an exchange spring magnet may fall. For this reason, it is desirable that it is less than [10atom%].

[0054] It is good also as a presentation which permuted a part of Nd by Pr, as for the amount of permutations in that case, it is desirable that it is 0.01 - 80atom%, and it is more desirable that it is 20 - 60atom%. It is because coercive force and

square shape nature can be raised, without producing most falls of a residual magnetic flux density as it is this range.

[0055] Moreover, it is good also as a presentation which permuted a part of Nd by Dy or Tb. As for the amount of permutations in that case, it is desirable that it is 0.01 - 10atom%. While being able to raise coercive force, without producing the remarkable fall of a residual magnetic flux density as it is this range, it is because improvement in the temperature characteristic is also attained.

[0056] It is good also as a presentation which permuted a part of Fe by Co, as for the amount of permutations in that case, it is desirable that it is 0.01 - 30atom%, and it is more desirable that it is 5 - 20atom%. In addition to improvement in the temperature characteristic, the flux density itself can be raised, without producing the fall of coercive force and flux density as it is this range. In addition, the hard phase at the time of permuting a part of Fe by Co was set to Nd₂(Fe-Co)₁₄B, and that it is Fe-Co has presumed the software phase from measurement of an X diffraction and the temperature dependence of magnetization etc.

[0057] Moreover, Fe or Co (Co which exists as Fe-Co) may be permuted by one or more sorts of aluminum, Mo, Zr, Ti, Sn, Cu, little Ga, or little Nb. It is because detailed-ization of an organization can be attained and coercive force increase can be attained by making these elements contain. However, if contained too much, magnetic properties will become the cause of falling conversely. As for the amount of elements permuted from this viewpoint, it is desirable that it is 0.1 - 3atom% to a total presentation.

[0058] When there are too few amounts of B, there is a possibility that manufacture of the magnet alloy concerning this invention may become difficult, and it is desirable that it is more than 4atom%. On the other hand, when many [too], there is a possibility that other phases which carry out induction of the fall of magnet properties other than Nd₂Fe₁₄B, Nd₂(Fe-Co)₁₄B, alpha-Fe, and alpha- (Fe-Co) may be made. For this reason, it is desirable that it is less than [7atom%].

[0059] Although V may be added from a viewpoint which aims at detailed-izing of

a crystalline substance, and coercive force increase, addition is not indispensable and it is not necessary to add it. However, since magnetic properties will become the cause of falling conversely if it adds too much, it is desirable that it is less than [2atom%].

[0060] In addition, although mixing of the impurity of a minute amount is unavoidable since the magnet concerning this invention is an alloy ingredient, the amount of impurities is so desirable that it is little, and it is suitable that it is below 1 mass %.

[0061] Manufacture of the magnet alloy concerning this invention adjusts and blends each metallic element so that it may become a desired presentation first, and it produces a dissolution ingot with well-known means, such as the RF induction dissolution, the inside of a vacuum, and under argon atmosphere. By giving this quenching methods, such as the strip cast method, the rare earth magnet alloy (alloy thin band) concerning this invention can be obtained. The strip cast method can be performed using well-known equipment, and does not need to add special amelioration especially. However, amelioration is not eliminated. A rare earth alloy thin band can also be obtained using a super-quenching method. Also in this case, it can prepare using a well-known means, and it can specifically super-quench, an amorphous ribbon can be produced, and it can be obtained by crystallizing at the temperature of 800 degrees C or less. Although it is necessary to set up manufacture conditions suitably according to the class of the equipment to be used or alloy and is not decided uniquely, especially when preparing the magnet alloy concerning this invention, it is necessary to care about a cooling rate. Even if a cooling rate is too early (an alloy thin band becomes thin) and it is too late (an alloy thin band becomes thick), there is a possibility that big-and-rough-izing of crystalline substance size and the homogeneity of an alloy thin band may be spoiled. It is appropriate for a cooling rate to prepare so that there may be thickness of the amorphous ribbon obtained by the alloy thin band or the super-quenching method acquired by the strip cast method and close relation and the thickness of the alloy thin band obtained may

be set to 10-300 micrometers. As the adjustment approach of a rare earth magnet alloy of having a detailed crystalline substance concerning this invention, although the strip cast method and the super-quenching method were explained, of course, you may prepare by the preparation approach of the rare earth magnet alloy of this invention producing these powder that is not limited and contains the amorphous section by approaches, such as gas atomization, and heat-treating it.

[0062] By these approaches, the crystalline substance alloy thin band which has the crystalline substance size of 80nm or less can be obtained. Moreover, although it is an isotropic thin band when it observes in macro, a partial different direction-ized field 0.1 micrometers or more can be formed.

[0063] It is one side face of invention that the rare earth magnet alloy concerning this invention is a crystalline substance. Although differential thermal analysis (DTA) was also performed, the clear exothermic peak was not seen.

[0064] In order to improve the property of the obtained magnet alloy, it is also possible to perform hydrogen processing indicated below. First, a magnet alloy is held in the hydrogen air current of 0.1 to 1 atmospheric pressure for 30 minutes to 2 hours. You may realize by considering as the mixture of gas with inert gas, such as an argon, and adjustment of a hydrogen partial pressure may be realized by decompressing with a vacuum pump. When retention temperature is too low, it has a possibility that hydrogen processing may not function effectively, and when too high, it has a possibility that crystal grain may make it big and rough. This viewpoint to retention temperature has desirable 750-900 degrees C. If retention temperature is the above-mentioned range, it will not be limited especially and will not eliminate being within the limits and making it above-mentioned change.

[0065] Next, with the retention temperature of 750-900 degrees C maintained, a hydrogen partial pressure is set to 1 or less torr, and is held further for 30 minutes to 1 hour. Then, it cools promptly to a room temperature, keeping a hydrogen partial pressure at 1 or less torr. At this time, if a cooling rate is too slow, hydrogen will be absorbed, and there is a possibility that bad influences

(fall of an anisotropy etc.) may attain to magnetic properties. For this reason, it is desirable to carry out over 30 minutes - 1 hour.

[0066] Such a series of hydrogen processings can raise the anisotropy of the magnet obtained. Moreover, it can reform so that it can grind easily, and the productivity of a grinding activity can be raised. In addition, the equipment which can be used for hydrogen processing will not be limited especially if processing under the above-mentioned conditions can be performed.

[0067] Then, the manufacture approach of the anisotropy exchange spring magnet using the magnet alloy mentioned above is explained.

[0068] First, the rare earth magnet alloy concerning this invention is ground below to partial different direction-ized area size (generally it is suitable to grind even to less than 1-micrometer extent). For example, when partial different direction-ized area size is 0.5 micrometers, it is good to grind to a particle 0.5 micrometers or less. There is evil in which oxidation resistance is inferior, so that it will become difficult to carry out magnetic field orientation and it will become fines, if too small, although not limited especially about the lower limit of the magnitude to grind. For this reason, as for extent of atomization, it is desirable that it is 0.1 micrometers or more. In addition, as What has made amorphous a part of powder in a milled condition is presumed from magnetic measurement, an X diffraction, etc.

[0069] Although various grinders can be used for grinding and a ball mill, a sand mill, a vibration mill, a jet mill, a pin mill, etc. are mentioned, from a viewpoint of submicron grinding, a ball mill is desirable. Although wet or dry type is sufficient as a ball mill, in order to prevent degradation of the magnetic properties by oxidation of magnet powder, it is desirable to carry out under the ambient atmosphere (under argon atmosphere and nitrogen-gas-atmosphere mind etc.) of a non-oxidizing quality. A cyclohexane etc. can be used for a wet ball mill. Moreover, in order to control condensation of the ground powder, it is necessary to use a dispersant. A dispersant can do the suitable effectiveness also for magnetic field orientation. As a dispersant, a succinic acid can be used with wet

and stearin acid can be used by dry type.

[0070] Next, a green compact is obtained by carrying out magnetic field orientation of the obtained magnet powder. that to which especially the equipment used for magnetic field orientation and a press is limited -- it is not -- various kinds -- a well-known means can be used. For example, pressing can be carried out where the direction of an easy axis is arranged by magnetic field impression. 1-5t /of welding pressure of 15 - 25kOe extent is suitable for 2 and the magnetic field to impress cm. It is suitable from the point of the ease of an activity to carry out discharge plasma sintering, producing a green compact using the mold of the discharge plasma sintering equipment explained below, being in a condition [having fitted in a mold], being carried by equipment the whole mold, and putting a pressure.

[0071] By carrying out pressure sintering of the obtained green compact in the discharge plasma, the bulk-ized anisotropy exchange spring magnet is obtained. Using discharge plasma pressure sintering, by sintering at low temperature comparatively, big and rough-ization of crystalline substance size should be controlled, and the property of the magnet obtained should be excelled.

Discharge plasma pressure sintering is Model by the Izumi tech company. It can carry out using the equipment of marketing, such as SPS-2040, and you may improve suitably according to the magnet and production line to manufacture.

[0072] The temperature of discharge plasma pressure sintering has a possibility that switched connection may become weak while crystalline substance size will make it big and rough and magnetic coercive force will decline, if too high. For this reason, it is desirable to carry out below 800 degrees C, and 700 degrees C or less are more desirable. On the other hand, since there is a possibility that eburnation may become inadequate when too low, it is desirable that it is 600 degrees C or more. In addition, the magnitude of switched connection can be recognized in the magnitude of springback. As for pressure sintering, it is desirable to carry out under reduced pressure using a rotary pump etc., and 15 - 25 K/min extent is suitable for the programming rate to processing temperature.

Although it is necessary to change the processing holding time suitably according to the equipment to be used, temperature, the magnitude of a green compact, etc. and a definition cannot be given uniquely, 0 - 5min extent is common. Furnace cooling is carried out after sintering at processing temperature. 10 - 30 K/min extent is suitable for a temperature fall rate. About [1-10t //cm] two are suitable for welding pressure. It ****, and crystalline substance size may make discharge plasma pressure sintering big and rough, and you may separate from it from the above-mentioned conditions in extent in which the property of an anisotropy exchange spring magnet does not deteriorate. In addition, when discharge plasma pressure sintering is used, the low bulk magnet of an oxygen density can be manufactured and improvement in a magnet property can be aimed at.

[0073] The bulk-ized magnet obtained by the above-mentioned approach shows a springback phenomenon in the 2nd and 3rd quadrant of a magnetization curve regardless of how of the grinding approach. This is because the rare earth magnet alloy with which the hard phase and the software phase are minutely intermingled in the magnitude of 60-80nm or less as a raw material, respectively was used.

[0074] As for the consistency of the bulk magnet obtained, it is desirable that it is close to the true density of the rare earth magnet alloy which is a raw material from a viewpoint which raises an energy product, and it is desirable to specifically consider as 95% or more of true density.

[0075] The exchange spring magnet manufactured by the approach of this invention shows the effectiveness which was excellent especially when the temperature characteristic which can attain a miniaturization had the property of it excelling and being hard to demagnetize and applied to the object for electric vehicles, and the drive motor for HEV, since magnet flux was large compared with the conventional Nd-Fe-B sintered magnet. Compared with a Nd-Fe-B sintered magnet, the reason nil why magnet flux is large is because the exchange spring magnet contains the software phase so much. As a reason the temperature characteristic is excellent, it thinks because coercive force devices

differ. It seems that namely, temperature stability is increasing since the crystalline substance size of a hard phase is small and serves as a coercive force device near a pinning mold.

[0076]

[Example] Next, although an example is given and this invention is explained concretely, this invention is not limited to these.

[0077] Using the preparation super-quenching equipment of a <example 1> 1. alloy thin band, the amorphous ribbon with a width of face [of 3mm] and a thickness of 30 micrometers was produced from the alloy ingot whose presentation is Nd₁₀Fe₈₄ B₆, and the alloy thin band was obtained by heat-treating to this. The conditions of super-quenching were made into roll peripheral-velocity 20 m/sec, and heat treatment conditions were set to 650 degree-Cx5min in a vacuum.

[0078] When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the soft phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [70nm or less and the soft phase of each magnitude] 70nm or less. Moreover, the partial different direction-sized area size investigated by TEM observation was 0.3-1.0 micrometers.

[0079] Decision of the superiority or inferiority of this alloy thin band prepared the VSM sample according to the following approaches, and it judged the case where Js1 is 1.1 or more "excellent." This takes into consideration the point that the anisotropy bulk exchange spring magnet which was excellent when Js1 used the ingredient which is 1.1 or more can be prepared.

[0080] 2. The VSM sample was obtained by grinding the obtained alloy thin band to a particle with a diameter of 25 micrometers or less using preparation of a VSM sample, and the Js1 evaluation approach mortar, and fixing powder with an epoxy resin all over the magnetic field of 10kOe. It was 1.7 when Js1 which measures the magnetization curve of a direction parallel to a magnetic field and the magnetization curve of a direction perpendicular to a magnetic field, and is expressed with the above-mentioned formula (1) was evaluated using the

oscillatory type magnetometer (VSM[by Toei Industry, Inc.]-5 -15 mold) of maximum magnetic field 16kOe. A result is shown in Table 1.

[0081] The alloy thin band was obtained like the example 1 except having made the presentation of a <example 2> alloy ingot into Nd₈Fe₈₆ B₆, and having made the conditions of super-quenching into roll peripheral-velocity 25 m/sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [80nm or less and the software phase of each magnitude] 80nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.55, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. Moreover, coercive force was 5.8kOe(s). A result is shown in Table 1.

[0082] The alloy thin band was obtained like the example 1 except having made the presentation of a <example 3> alloy ingot into Nd₆Fe₈₈ B₆, and having made the conditions of super-quenching into roll peripheral-velocity 30 m/sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [80nm or less and the software phase of each magnitude] 80nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.1-0.5 micrometers. It was 1.4, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0083] The alloy thin band was obtained like the example 1 except having made the presentation of a <example 4> alloy ingot into Nd₄Fe₉₀ B₆, and having made the conditions of super-quenching into roll peripheral-velocity 40 m/sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [80nm or less and the software phase of each magnitude] 80nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.1-0.4 micrometers. It was 1.35, when the VSM

sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0084] The alloy thin band was obtained like the example 2 except having adopted the same super-quenching conditions as the <example 1 of comparison> example 1. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [100nm or less and the software phase of each magnitude] 100nm or less. Moreover, although observed by TEM, the partial different direction-ized field was not able to be checked. It was 1.05, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 1.

[0085]

[Table 1]

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	Js ₁
実施例 1	Nd ₁₀ Fe ₈₄ B ₆	40-70	40-70	0.3-1.0	1.7
実施例 2	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₄	40-80	40-80	0.2-0.6	1.55
実施例 3	Nd ₆ Fe ₈₈ B ₆	40-80	40-80	0.1-0.5	1.4
実施例 4	Nd ₄ Fe ₉₀ B ₆	50-80	50-80	0.1-0.4	1.35
比較例 1	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₄	50-100	50-100	-	1.05

[0086] It was shown that the alloy thin band applied to this invention as shown in Table 1 is excellent as an anisotropy exchange spring magnet ingredient.

[0087] The alloy thin band was obtained like the example 2 except having set the presentation of a <example 5> alloy ingot to Nd8Fe 85B7. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [80nm or less and the software phase of each magnitude] 80nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.6, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. Coercive force was 5.8kOe(s). A result is shown in Table 2.

[0088] The alloy thin band was obtained like the example 2 except having made the presentation of a <example 6> alloy ingot into Nd₈Fe₈₅ B₆ V₁. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [40nm or less and the software phase of each magnitude] 40nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.6, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. Coercive force was 9.8kOe(s). A result is shown in Table 2.

The alloy thin band was obtained like the example 2 except having made the presentation of a <example 7> alloy ingot into Nd₈Fe₈₈ B₄. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [40nm or less and the software phase of each magnitude] 40nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.55, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. Coercive force was 3.4kOe(s). A result is shown in Table 2.

[0089] The alloy thin band was obtained like the example 2 except having made the presentation of a <example 8> alloy ingot into Nd₈Fe₈₆ B₄ V₂. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [40nm or less and the software phase of each magnitude] 40nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.6, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. Coercive force was 4.3kOe(s). A result is shown in Table 2.

[0090] The alloy thin band was obtained like the example 2 except having set the presentation of the <example 2 of comparison> alloy ingot to Nd₈Fe₈₉B₃. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard

phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [80nm or less and the software phase of each magnitude] 80nm or less. Moreover, although observed by TEM, the partial different direction-ized field was not able to be checked. It was 1.05, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 2.

[0091]

[Table 2]

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μ m)	Js ₁
実施例2	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₈	40-80	40-80	0.2-0.6	1.55
実施例5	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₇	40-80	40-80	0.2-0.6	1.6
実施例6	Nd ₈ Fe ₈₆ B ₆ V ₁	15-40	15-40	0.2-0.6	1.6
実施例7	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₄	15-40	15-40	0.2-0.6	1.55
実施例8	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₄ V ₂	15-40	15-40	0.2-0.6	1.8
比較例2	Nd ₈ Fe ₈₈ B ₃	40-80	40-80	-	1.05

[0092] It was shown that the alloy thin band applied to this invention as shown in Table 2 is excellent as an anisotropy exchange spring magnet ingredient. Moreover, it was shown by adding Ti, V, Zr, and Nb that effectiveness is in the improvement in coercive force. In addition, although it was going to prepare the sample which made boron concentration 8atom(s)%, the phenomenon in which a deposit of B compound is thought was discovered.

[0093] The presentation of a <example 9> alloy ingot was made into Nd₉Fe₇₆Co₈B₆V₁, and the alloy thin band was prepared by the strip cast method. The conditions of the strip cast method set the cooling rate to about 900 degrees C which is the temperature to solidify to about 2500 degrees C/sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [40nm or less and the software phase of each magnitude] 40nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.3-0.8 micrometers. It was 1.7, when the

VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0094] The alloy thin band was obtained like the example 9 except having made the presentation of a <example 10> alloy ingot into Nd₁₀Fe₇₅Co₈ B6 V1, and having set the conditions of the strip cast to the cooling rate of about 2200 degrees C / sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [40nm or less and the software phase of each magnitude] 40nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.3-1.0 micrometers. It was 1.8, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0095] The alloy thin band was obtained like the example 9 except having made the presentation of a <example 11> alloy ingot into Nd₇Fe₇₈Co₈ B6 V1, and having set the conditions of the strip cast to the cooling rate of about 3000 degrees C / sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [50nm or less and the software phase of each magnitude] 50nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.6, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0096] The alloy thin band was obtained like the example 9 except having made the presentation of a <example 12> alloy ingot into Nd₆Fe₇₉Co₈ B6 V1, and having set the conditions of the strip cast to the cooling rate of about 4000 degrees C / sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [50nm or less and the software phase of each magnitude] 50nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.1-0.5 micrometers. It was

1.5, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0097] The alloy thin band was obtained like the example 9 except having made the presentation of a <example 13> alloy ingot into Nd₄Fe₈₁Co₈B₆V₁, and having set the conditions of the strip cast to the cooling rate of about 5000 degrees C / sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [60nm or less and the software phase of each magnitude] 60nm or less. Moreover, the partial different direction-ized area size investigated by TEM observation was 0.1-0.5 micrometers. It was 1.45, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0098] The alloy thin band was obtained like the example 9 except having made the presentation of the <example 3 of comparison> alloy ingot into Nd₆Fe₇₉Co₈B₆V₁. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the software phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [200nm or less and the software phase of each magnitude] 200nm or less. Moreover, although observed by TEM, the partial different direction-ized field was not able to be checked. It was 1.05, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 3.

[0099]

[Table 3]

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	Js ₁
実施例9	Nd ₈ Fe ₇₈ Co ₈ B ₆ V ₁	15-40	15-40	0.3-0.8	1.7
実施例10	Nd ₁₀ Fe ₇₅ Co ₈ B ₆ V ₁	15-40	15-40	0.3-1.0	1.8
実施例11	Nd ₇ Fe ₇₈ Co ₈ B ₆ V ₁	25-50	25-50	0.2-0.6	1.6
実施例12	Nd ₈ Fe ₇₉ Co ₈ B ₆ V ₁	30-50	30-50	0.1-0.5	1.5
実施例13	Nd ₄ Fe ₈₁ Co ₈ B ₆ V ₁	40-60	40-60	0.1-0.5	1.45
比較例3	Nd ₆ Fe ₇₉ Co ₈ B ₆ V ₁	100-200	100-200	-	1.05

[0100] It was shown that the alloy thin band applied to this invention as shown in Table 3 is excellent as an anisotropy exchange spring magnet ingredient.

Moreover, the inclination for crystalline substance size to become large was shown, so that there were few amounts of Nd(s).

[0101] The alloy thin band was obtained like the example 1 except having made the presentation of a <example 14> alloy ingot into Nd₇Fe₇₈Co₈ B6 V1, and having made the conditions of super-quenching into roll peripheral-velocity 30 m/sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the soft phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [50nm or less and the soft phase of each magnitude] 50nm or less. Moreover, the partial different direction-sized area size investigated by TEM observation was 0.2-0.6 micrometers. It was 1.6, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 4.

[0102] The alloy thin band was obtained like the example 1 except having made the presentation of a <example 15> alloy ingot into Nd₆Fe₇₉Co₈ B6 V1, and having made the conditions of super-quenching into roll peripheral-velocity 40 m/sec. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the soft phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [50nm or less and the soft phase of each magnitude] 50nm or less. Moreover, the partial different direction-sized area size investigated by TEM observation was 0.1-0.5 micrometers. It was 1.5, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 4.

[0103] The alloy thin band was obtained like the example 14 except having made the presentation of the <example 4 of comparison> alloy ingot into Nd₆Fe₇₉Co₈ B6 V1. When the cutting plane of the obtained alloy thin band was observed by SEM, the hard phase and the soft phase were intermingled in the alloy thin band, and the hard phase was [100nm or less and the soft phase of each magnitude] 100nm or less. Moreover, although observed by TEM, the partial

different direction-ized field was not able to be checked. It was 1.05, when the VSM sample was created by the same approach as an example 1 and Js1 was evaluated. A result is shown in Table 4.

[0104]

[Table 4]

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	Js ₁
実施例14	Nd ₇ Fe ₇₈ Co ₈ B ₆ V ₁	25-50	25-50	0.2-0.6	1.6
実施例15	Nd ₆ Fe ₇₉ Co ₈ B ₆ V ₁	30-50	30-50	0.1-0.5	1.5
比較例4	Nd ₆ Fe ₇₉ Co ₈ B ₆ V ₁	60-100	60-100	-	1.05

[0105] It was shown that the alloy thin band applied to this invention as shown in Table 4 is excellent as an anisotropy exchange spring magnet ingredient.

[0106] The wet ball mill (the bottom of Ar ambient atmosphere, cyclohexane) ground the alloy thin band obtained by the approach given in the <example 16> example 9. Polybutenyl succinimid tetraethylenepentamine (molecular weight 1300) was used as a dispersant. This dispersant was a thing containing some mineral oil. When the magnitude of the powder after grinding is checked by SEM, it is less than 1 micrometer, and the particle 1 micrometers or more was not able to be checked. Orientation of this powder was carried out all over the magnetic field of 20kOe(s), 2t /was pressurized by 2 cm, and the green compact was obtained.

[0107] Discharge plasma sintering of this green compact was carried out for 3 minutes using discharge plasma sintering equipment (the Izumi tech incorporated company make; ModelSPS-2040) by welding-pressure 2 and 650 degrees C of ambient temperature of 9t/cm, and the bulk exchange spring magnet was obtained. Nonmagnetic WC mold was used for the mold and sintering was performed under reduced pressure by the rotary pump. Moreover, the programming rate was made into 20 K/min. The configuration of the obtained bulk exchange spring magnet is 10mmx10mmx7mm, and the magnetic consistency had reached true density. When TEM observation of the magnet is

carried out, crystalline substance size is 15-40nm, and it has checked that the sense of a hard phase had gathered from the diffraction pattern of an electron ray. Moreover, when SEM observation of a magnetic cross section was tried, the organization gestalt to the extent that discernment of the original powder appearance can hardly be performed was made.

[0108] The magnetization curve of the obtained bulk exchange spring magnet was measured with BH (direct current) marker of maximum impression magnetic field 20kOe. The following type (3) : [0109]

[Equation 4]

$$J_{s2} = \frac{20 \text{ kOe における磁場配向方向磁化}}{20 \text{ kOe における磁場垂直方向磁化}} \quad (3)$$

[0110] When it comes out and Js2 expressed is evaluated, it is 1.8, and the anisotropy was improving rather than the alloy thin band of an example 9 by bulk-ization by discharge plasma equipment. Moreover, it was 25MGOe when the energy product was computed from the magnetization curve. A result is shown in Table 5.

[0111] The bulk exchange spring magnet was obtained like the example 16 except having set 8t /of welding pressure at the time of <example 17> sintering to 2 cm. The magnetic consistency was 95% of true density. When Js2 was evaluated, it was 1.8 and the energy products were 20MGOe(s). A result is shown in Table 5.

[0112] The bulk exchange spring magnet was obtained like the example 16 except having set 7t /of welding pressure at the time of <example 18> sintering to 2 cm. The magnetic consistency was 90% of true density. When Js2 was evaluated, it was 1.8 and the energy products were 18MGOe(s). A result is shown in Table 5.

[0113] The bulk exchange spring magnet was obtained like the example 16 except having made temperature at the time of <example 19> sintering into 810 degrees C. The magnetic consistency had reached true density, Js2 was 1.5 and the energy products were 15MGOe(s). A result is shown in Table 5.

[0114]

[Table 5]

	組成 (atom%)	J_s	BH_{max} (MGoe)
実施例16	$Nd_9Fe_{76}Co_8B_8V_1$	1.8	25
実施例17	$Nd_9Fe_{76}Co_8B_8V_1$	1.8	20
実施例18	$Nd_9Fe_{76}Co_8B_8V_1$	1.8	18
実施例19	$Nd_9Fe_{76}Co_8B_8V_1$	1.5	15

[0115] Coercive force was all the value of 7.0kOe extent in the examples 16, 17, and 18, and was 5.0kOe(s) in the example 18. As shown in Table 5, it was suggested that it is desirable to carry out 95% or more of true density as for a magnet consistency, and the sintering temperature in discharge plasma equipment has desirable 800 degrees C or more.

[0116] The exchange spring magnet of the <example 20> example 16 was applied to the surface magnet mold motor (stator 12 pole, Rota 8 pole). Drawing 2 is 1/4 sectional view of the surface magnet mold motor of the applied concentrated winding. As for an outside, the aluminum case 11 and its inside are stators (the bore of 52mm, the outer diameter of 108mm; layered product of a magnetic steel sheet) 12, and, for 1-2, u phase and 3-4 are [v phase and 5-6] w phase windings. Moreover, the stator 12 was made into the layered product of a magnetic steel sheet. The magnet 13 of a configuration which is illustrated has been arranged on Rota iron 14. In addition, the diameter of the outermost of Rota set to 50.7mm, and a stator and the product thickness of Rota were 79.8mm.

[0117] The engine performance of a motor was 2kW of maximum rating, and 160 degrees C of heat-resistant limitations. The coercive force of this magnet was 7.2kOe(s). On the other hand, when the conventional NdFeB sintered magnet is used, it is necessary to use the magnet more than coercive force 19.8kOe extent for securing equivalent thermal resistance. That is, when the magnet of this invention was applied to a motor, discovering the property which was excellent in the thermal design was shown.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] It is the conceptual diagram of the magnet alloy concerning this invention.

[Drawing 2] It is 1/4 sectional view of the surface magnet mold motor of a concentrated winding by which the exchange spring magnet of this invention was applied.

[Description of Notations]

11 Aluminum Case

12 Stator

13 Magnet

14 Rota Iron

15 Shaft

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

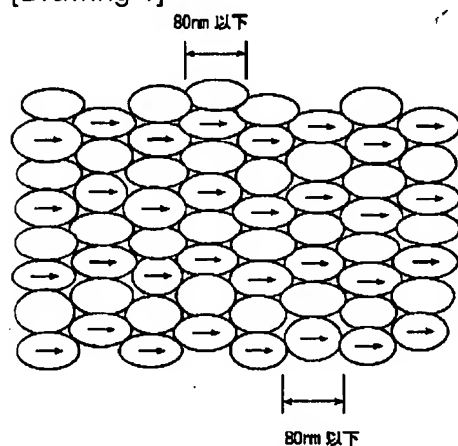
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. **** shows the word which can not be translated.

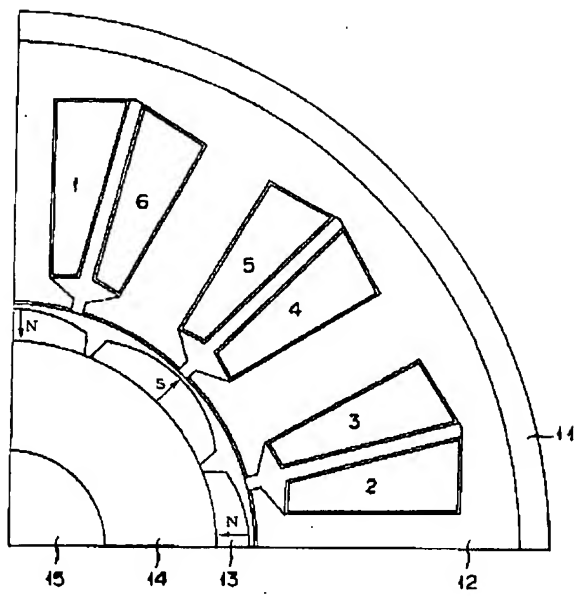
3. In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]



[Drawing 2]



[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-343659

(P2002-343659A)

(43) 公開日 平成14年11月29日 (2002.11.29)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テグメント* (参考)
H 0 1 F 41/02		H 0 1 F 41/02	C 4 K 0 1 8
B 2 2 F 3/00		B 2 2 F 3/00	F 5 E 0 4 0
C 2 2 C 33/02		C 2 2 C 33/02	J 5 E 0 6 2
	38/00	38/00	3 0 3 D
H 0 1 F 1/08	3 0 3	H 0 1 F 1/08	B
審査請求 未請求 請求項の数14 O L (全 12 頁)			

(21) 出願番号 特願2001-147831(P2001-147831)

(22) 出願日 平成13年5月17日 (2001.5.17)

(71) 出願人 000003997

日産自動車株式会社

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

(72) 発明者 島田 宗勝

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産
自動車株式会社内

(72) 発明者 小野 秀昭

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産
自動車株式会社内

(74) 代理人 100072349

弁理士 八田 幹雄 (外4名)

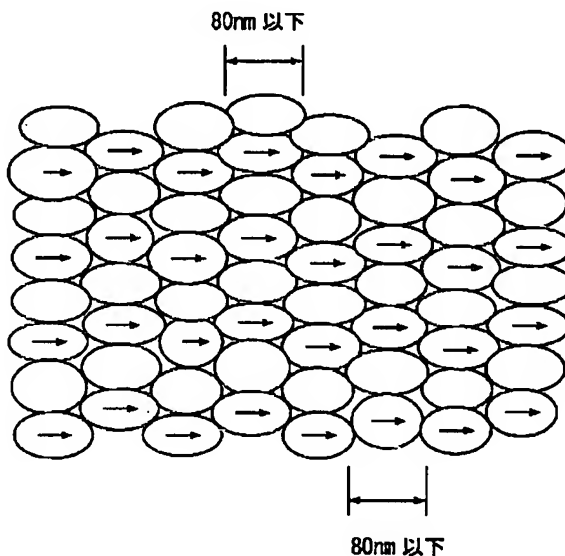
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 希土類磁石合金およびこれを用いた異方性交換スプリング磁石

(57) 【要約】

【課題】 優れた磁石特性を有する異方性交換スプリング磁石を簡便に製造する方法を提供する。

【解決手段】 ハード磁性相およびソフト磁性相が混在してなるNdFeB系希土類磁石合金であって、前記ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさがそれぞれ80nm以下であり、かつ、ハード磁性相の磁化容易軸の方向が揃っている部分異方化領域の大きさが0.1μm以上であることを特徴とする希土類磁石合金を部分異方化領域の大きさ以下に粉砕して磁石粉末を得る段階と、前記磁石粉末を磁場中成形し圧粉体を得る段階と、前記圧粉体を放電プラズマ焼結しバルク磁石を得る段階と、からなる異方性交換スプリング磁石の製造方法。

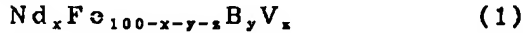


【特許請求の範囲】

【請求項1】 ハード磁性相およびソフト磁性相が混在してなるNdFeB系希土類磁石合金であって、前記ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさがそれぞれ80nm以下であり、かつ、ハード磁性相の磁化容易軸の方向が揃っている部分異方化領域の大きさが0.1μm以上であることを特徴とする希土類磁石合金。

【請求項2】 組成が、下記式(1)：

【化1】



(式中、 $x=4\sim 10$ 、 $y=4\sim 7$ 、 $z=0\sim 2$ である)であることを特徴とする請求項1に記載の希土類磁石合金。

【請求項3】 Ndの0.01～80atom%がPrで置換されてなることを特徴とする請求項2に記載の希土類磁石合金。

【請求項4】 Ndの0.01～10atom%がDy

$$J_s = \frac{\text{磁場配向方向の磁化の大きさ}}{\text{磁場配向方向に垂直な方向の磁化の大きさ}} \quad (2)$$

で表される16kOeにおける異方化度が1.1以上であることを特徴とする請求項1～7のいずれか1項に記載の希土類磁石合金。

【請求項9】 ストリップキャスト法または超急冷法を用いて、希土類磁石インゴットから請求項1～8のいずれか1項に記載の希土類磁石合金を製造する方法。

【請求項10】 前記ストリップキャスト法または超急冷法によって製造された結晶質合金薄帯の厚さが10～300μmであることを特徴とする請求項9に記載の希土類磁石合金を製造する方法。

【請求項11】 請求項1～8のいずれか1項に記載の希土類磁石合金を部分異方化領域の大きさ以下に粉碎して磁石粉末を得る段階と、前記磁石粉末を磁場中成形し、圧粉体を得る段階と、前記圧粉体を放電プラズマ中で加圧焼結してバルク磁石を得る段階と、からなる異方性交換スプリング磁石の製造方法。

【請求項12】 前記希土類磁石合金の粉碎は、湿式ボールミルまたは乾式ボールミルで行うことを特徴とする請求項11に記載の製造方法。

【請求項13】 前記バルク磁石の密度が、前記希土類磁石合金の真密度の95%以上であることを特徴とする請求項11または12に記載の製造方法。

【請求項14】 請求項11～13のいずれか1項に記載の製造方法によって得られた異方性交換スプリング磁石を備えてなるモータ。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、異方性交換スプリング磁石およびその製造方法に関し、特に、優れた磁気特性を有する異方性交換スプリング磁石を簡便に製造す

またはTbで置換されてなることを特徴とする請求項2または3に記載の希土類磁石合金。

【請求項5】 Feの0.01～30atom%がCoで置換されてなることを特徴とする請求項2～4のいずれか1項に記載の希土類磁石合金。

【請求項6】 FeまたはCoが、全組成に対して0.1～3atom%のAl、Mo、Zr、Ti、Sn、Cu、GaまたはNbの1種以上で置換されてなることを特徴とする請求項2～5のいずれか1項に記載の希土類磁石合金。

【請求項7】 前記ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさが60nm以下であることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の希土類磁石合金。

【請求項8】 前記磁石合金を25μm以下の大きさに粉碎し、10kOeの磁場中で磁場配向させた磁石に関して、下記式(2)：

【数1】

る方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 モータ等に用いられる磁石としては、高い磁気特性を有するNd-Fe-B系永久磁石が広く用いられており、溶解法(M. Sagawa et al, Japanese Journal of Applied Physics 26 (1987) 785参照)や急冷法(R. W. Lee, Applied Physics Letter 46 (1985) 790参照)を用いて製造されている。また、HDDR処理(T. Takeshita et al, Proc. 10th Int. Workshop on Rare Earth Magnets and Their Applications, Tokyo, (1989) 399参照)が開発され、結晶粒の微粒化による保磁力向上が可能となっている。このとき、Co、Ga、Zr、Hfなどの添加元素を加えて、得られる粉末に異方性を付与することができる。これらの技術開発によって、優れた磁気特性を有するNd-Fe-B系永久磁石の開発が可能になった。

【0003】 しかしながら、Nd-Fe-B系永久磁石は、磁石特性に関して理論上の限界値に近づきつつある。このため、さらなる高性能を有する次世代磁石の開発が所望されており、近年、交換スプリング磁石が注目を集めている(E. F. Kneller and R. Hawig, IEEE Transaction Magnetics 27 (1991) 3588他)。交換スプリング磁石は、ハード磁性相(以下、ハード相とも記載)とソフト磁性相(以下、ソフト相とも記載)が数十nmオーダーで微細分散した組織からなり、両相の磁化

が交換相互作用で結び付くことによってソフト相の磁化が容易に反転せず、全体として単一ハード相のように振る舞う磁石であり、ナノコンポジット磁石とも称される。理論上は $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}\text{N}_3/\text{Fe}-\text{Co}$ において、異方性化できれば $(BH)_{\text{max}}=137\text{MGOe}$ もの値を得られることが報告されている(R. Skomski and J. M. D. Coey, Physical Review B 48 (1993) 15812)。

【0004】これまでのところ、R. Coehoorn et al, Journal de Physique 49 (1988) C8-669に $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Fe}_3\text{B}$ 系交換スプリング磁石の製造方法が開示されている。また、特開平7-173501号公報、特開平7-176417号公報、L. Withanawasam et al, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 124 (1993) L1には、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\text{Fe}$ 系交換スプリング磁石の製造方法が開示されている。

【0005】しかしながら、上記文献において用いられているメルトスパン法やメカニカルアロイング(MA)法では結晶方位を揃えることができないため等方性交換スプリング磁石しか得られず、交換スプリング磁石の特性を十分に活かしきれていなかった。

【0006】異方性交換スプリング磁石の製造方法としては、特開平11-8109号公報には $\text{Nd}-\text{Fe}-\text{B}$ アモルファス合金を強磁場中で加熱結晶化する方法が、特開平11-97222号公報にはハード相とソフト相が微細分散析出するような急冷薄帯合金を熱間加工する方法が、特開2000-235909号公報には急冷薄帯を急速昇温して直接温間一軸変形する方法がそれぞれ開示されている。

【0007】しかしながら、上記方法によって製造された異方性交換スプリング磁石は磁石特性が不充分であり、また、より簡便な異方性交換スプリング磁石の製造方法の開発が所望されていた。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】上記事項に鑑み、本発明は、優れた磁石特性を有する異方性交換スプリング磁石を簡便に製造する方法を提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、出発材料として、合金全体としては等方的であるが、ハード相とソフト相とが微細に分散して部分的にはハード相の磁化容易軸の方向が揃っている希土類磁石合金を用い、これをハード相の揃った領域より小さいサイズまで粉碎する製法を採用することによって上記課題が解決できることを見出し、諸条件を確立して本発明を完成させたもので

ある。即ち、このような磁石合金を磁化容易軸の方向が揃っている部分異方化領域より小さいサイズにまで粉碎して磁場中成形した場合、異方性を有する圧粉体が得られる。これを結晶質が肥大化しない条件で焼結することにより、優れた磁石特性を有する異方性交換スプリング磁石を容易に得ることができる。本発明の具体的構成は以下の通りである。

【0010】請求項1に記載の発明は、ハード磁性相およびソフト磁性相が混在してなる NdFeB 系希土類磁石合金であって、前記ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさがそれぞれ 80nm 以下であり、かつ、ハード磁性相の磁化容易軸の方向が揃っている部分異方化領域の大きさが $0.1\mu\text{m}$ 以上であることを特徴とする希土類磁石合金である。

【0011】請求項2に記載の発明は、組成が、下記式(1)：

【0012】

【化2】



【0013】(式中、 $x=4\sim 10$ 、 $y=4\sim 7$ 、 $z=0\sim 2$ である)であることを特徴とする請求項1に記載の希土類磁石合金である。

【0014】請求項3に記載の発明は、 Nd の $0.01\sim 80\text{atom}\%$ が Pr で置換されてなることを特徴とする請求項2に記載の希土類磁石合金である。

【0015】請求項4に記載の発明は、 Nd の $0.01\sim 10\text{atom}\%$ が Dy または Tb で置換されてなることを特徴とする請求項2または3に記載の希土類磁石合金である。

【0016】請求項5に記載の発明は、 Fe の $0.01\sim 30\text{atom}\%$ が Co で置換されてなることを特徴とする請求項2～4のいずれか1項に記載の希土類磁石合金である。

【0017】請求項6に記載の発明は、 Fe または Co が、全組成に対して $0.1\sim 3\text{atom}\%$ の Al 、 Mo 、 Zr 、 Ti 、 Sn 、 Cu 、 Ga または Nb の1種以上で置換されてなることを特徴とする請求項2～5のいずれか1項に記載の希土類磁石合金である。

【0018】請求項7に記載の発明は、前記ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさが 60nm 以下であることを特徴とする請求項1～6のいずれか1項に記載の希土類磁石合金である。

【0019】請求項8に記載の発明は、前記磁石合金を $25\mu\text{m}$ 以下の大きさに粉碎し、 10kOe の磁場中で磁場配向させた磁石に関して、下記式(2)：

【0020】

【数2】

$$J_{\text{SI}} = \frac{\text{磁場配向方向の磁化の大きさ}}{\text{磁場配向方向に垂直な方向の磁化の大きさ}} \quad (2)$$

【0021】で表される 16kOe における異方化度が

1.1以上であることを特徴とする請求項1～7のい

れか1項に記載の希土類磁石合金である。

【0022】請求項9に記載の発明は、ストリップキャスト法または超急冷法を用いて、希土類磁石インゴットから請求項1～8のいずれか1項に記載の希土類磁石合金を製造する方法である。

【0023】請求項10に記載の発明は、前記ストリップキャスト法または超急冷法によって製造された結晶質合金薄帯の厚さが10～300 μ mであることを特徴とする請求項9に記載の希土類磁石合金を製造する方法である。

【0024】請求項11に記載の発明は、請求項1～8のいずれか1項に記載の希土類磁石合金を部分異方化領域の大きさ以下に粉碎して磁石粉末を得る段階と、前記磁石粉末を磁場中成形し、圧粉体を得る段階と、前記圧粉体を放電プラズマ中で加圧焼結してバルク磁石を得る段階と、からなる異方性交換スプリング磁石の製造方法である。

【0025】請求項12に記載の発明は、前記希土類磁石合金の粉碎は、湿式ボールミルまたは乾式ボールミルで行うことを特徴とする請求項11に記載の製造方法である。

【0026】請求項13に記載の発明は、前記バルク磁石の密度が、前記希土類磁石合金の真密度の95%以上であることを特徴とする請求項11または12に記載の製造方法である。

【0027】請求項14に記載の発明は、請求項11～13のいずれか1項に記載の製造方法によって得られた異方性交換スプリング磁石を備えてなるモータである。

【0028】

【発明の効果】以上のように構成された本発明によれば、請求項毎に次のような効果を奏する。

【0029】請求項1に記載の発明にあっては、磁化容易軸を一方向に揃えた異方性バルク交換スプリング磁石を簡便に製造することができる。異方性であるのでエネルギー積が大きく、使用する希土類金属量を低減することができる。従って、例えば本発明に係る磁石を自動車のモータに適用した場合、モータの小型・軽量化を達成でき、自動車の燃費向上および製造コスト削減に大きく寄与しうる。また、温度特性に優れた磁石を得ることができ、高温耐久性が要求される部位に適用した場合に特に有益な効果を示す。

【0030】請求項2に記載の発明にあっては、組成を上記式(1)とすることにより、磁石の保磁力、生産性を高めることができる。

【0031】請求項3に記載の発明にあっては、Ndの一部をPrで置換することによって、残留磁束密度の低下を生じることなく保磁力および角型性を向上させることができる。

【0032】請求項4に記載の発明にあっては、Ndの一部をDyまたはTbで置換することによって、残留磁

束密度の低下を生じることなく保磁力および温度特性を向上させることができる。

【0033】請求項5に記載の発明にあっては、Feの一部をCoで置換することによって、温度特性や磁束密度を向上させることができる。

【0034】請求項6に記載の発明にあっては、FeまたはCoの一部をAl、Mo、Zr、Ti、Sn、Cu、GaまたはNbの1種以上で置換することによって、微粒化を図ることができ、ひいては保磁力増大を達成できる。

【0035】請求項7に記載の発明にあっては、ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさを60nm以下とすることによって、保磁力のさらなる増大を実現できる。

【0036】請求項8に記載の発明にあっては、上記式(2)を満たす希土類磁石合金を用いることによって、優れた異方性交換スプリング磁石を得ることができる。

【0037】請求項9に記載の発明にあっては、ストリップキャスト法または超急冷法を用いることによって、請求項1～8の希土類磁石合金を得ることができる。

【0038】請求項10に記載の発明にあっては、厚さが10～300 μ mとなるように結晶質合金薄帯を調整することによって、微細な結晶質を有する合金薄帯とすることができる。

【0039】請求項11に記載の発明にあっては、異方性を有するバルク交換スプリング磁石が得られる。また、放電プラズマ中で加圧焼結することによって、加熱時間の短縮および加熱温度の低減が図れ、交換スプリング磁石の結晶質の微細粒が維持される。従って、得られる交換スプリング磁石の磁石特性がより優れたものとなる。

【0040】請求項12に記載の発明にあっては、バルク磁石の密度を原料である希土類磁石合金の真密度の95%以上とすることによって、エネルギー積を好適なものとするすることができる。

【0041】請求項13に記載の発明にあっては、優れた磁石特性を有する本発明に係る交換スプリング磁石を搭載したモータとすることによって、モータの小型・軽量化を達成でき、モータの燃費向上および製造コスト削減を達成できる。また、高温耐久性に優れるため、熱設計上優れた効果を有する。

【0042】

【発明の実施の形態】まず、本発明に係る磁石合金について説明する。

【0043】本発明に係るNdFeB系磁石合金は、ハード磁性相および前記ソフト磁性相の大きさが80nm以下のハード相およびソフト相が混在し、ハード相の磁化容易軸の方向が揃っている部分異方化領域の大きさが0.1 μ m以上であることを特徴とする。図1には本発明に係る磁石合金の概念図を示す。矢印は磁化容易軸の

方向を示し、矢印が付された粒子がハード相を、矢印が付されていない粒子がソフト相を表す。実際の磁石合金においては、図1に示すようなハード相の磁化容易軸の方向が揃った小領域（本願において、「部分異方化領域」とも記載）が組み合わさった構造を有しており、さらに部分異方化領域も、やや拡大したマクロのスケールで見るとテクスチャーを持っている。即ち、略同一の異方化方向を有する複数の部分異方化領域からなる領域が形成されている。そして、合金全体としては等方性を有する。即ち、合金は異方性を有する部分異方化領域の集合体のような構成をなしている。なお、本発明において磁石合金とは、結晶質合金薄帯、これらを粗粉碎した中間体など種々の態様を指すものであり、特に限定的に用いられるものではない。

【0044】ハード相およびソフト相の大きさおよび混在状態はSEMを用いて確認することができ、その際、ハード相およびソフト相の大きさ（以下、結晶質サイズとも記載）は最大径として定義される。結晶質サイズは、大きすぎると交換相互作用が低下するため80nm以下であることが必要であり、60nm以下であることが好ましい。結晶質サイズの下限值に関しては特に限定されるものではなく、小さいほど強い交換相互作用が得られるが、製造の困難性に伴う生産性低下などを考慮すると5nm以上が实际的である。

【0045】ハード相の磁化容易軸の方向はTEMにより最終的には確認することができ、本願においては磁化容易軸の方向が $\pm 15^\circ$ な場合に「磁化容易軸の方向が揃っている」と判断するものとする。部分異方化領域の大きさの確認も最終的にはTEMによって行うことができ、本願においては磁化容易軸の方向が $\pm 15^\circ$ 以内になっている領域を部分異方化領域の大きさとして定義するものとする。TEMの代用方法を用いて磁石合金の優劣を判断してもよく、例えば、次段落で説明する演繹的な推論方法を用いてもよい。本発明は、磁石合金を部分異方化領域の大きさ以下の粒子に粉碎し、この粉末を用

いることによって交換スプリング磁石に異方性を付与するものである。即ち、部分異方化領域の大きさ以下の粒子に磁石合金を粉碎した場合、粉碎によって生成した磁石粉末は、異方性を有する磁石となる。なお、粉碎に際しては、隣接する部分異方化領域との境界面において分離しやすいと思料される。異方性を有する磁石粉末に磁場をかけた場合、磁石粉末の整列により磁石の集合体（粉末の圧粉体）は、異方性を有するものとなる。部分異方化領域の大きさは0.1 μm 以上であることが必要である。磁石合金の粉碎は、部分異方化領域の大きさ以下にまで行う必要があるが、粉碎によって生じた磁石粉末の大きさが小さすぎると、磁場配向させることが困難となるからである。部分異方化領域の大きさの上限は特に限定されるものではなく、大きいほど好ましい。

【0046】次に、出発原料である希土類磁石合金が部分的に異方化し、本発明の磁石合金としての特性を満たすか否かを簡便に知る方法について述べる。一つは、実際にバルク磁石を製造して、部分異方化領域の有無を推定する方法である。具体的には、ボールミルを用いて粉碎し、磁場中プレスにより圧粉体を作製し、800℃以下の温度で放電プラズマ装置によりバルク化し磁石とする。このバルク磁石の磁場中プレスの磁場方向とそれに垂直な方向での磁化曲線を比較することにより、異方性の程度を調べ、異方性が有れば部分異方化領域を有していたと推定する方法である。もう一つは、より簡便な方法である。磁石合金（ストリップキャスト法で作製した希土類合金薄帯や、アモルファスリボンを熱処理して結晶質とした薄帯等）を25 μm 以下に粉碎し、エポキシ樹脂（接着剤）に混ぜ、10kOeの磁場中で固めて、振動型磁力計（VSM）用サンプルを作製する。VSMにて磁場方向とそれに垂直な方向での磁化曲線を測定し、下記式（2）：

【0047】

【数3】

$$J_{S1} = \frac{\text{磁場配向方向の磁化の大きさ}}{\text{磁場配向方向に垂直な方向の磁化の大きさ}} \quad (2)$$

【0048】で表される16kOeにおける磁化の比（異方化度）から部分異方化の程度を推定する方法である。磁石合金をもっと細かく粉碎する方が好ましいが、固化させる際のハンドリングの容易性や、乳鉢を用いて手で粉碎し篩い分けできる大きさを考慮すると25 μm 程度が好ましい。

【0049】後者の方法は希土類磁石材料開発において特に威力を発揮しうる。経験的には、 J_{S1} が1.1以上の希土類磁石合金を出発材料とした場合に、優れた異方性交換スプリング磁石の作製が可能であった。 J_{S1} は1.3以上がより好ましく、1.5以上がさらに好ましい。

【0050】交換スプリング磁石を得るための好ましい

磁石組成としては、下記式（1）：

【0051】

【化3】



【0052】が挙げられる。この組成でのハード相はNd₂Fe₁₄Bであり、ソフト相は $\alpha\text{-Fe}$ であることがX線回折、磁化の温度依存性の測定等より推定できた。

【0053】Ndの量が少なすぎると、交換スプリング磁石を製造した際の保磁力の確保が困難になる場合があるため4atôm%以上であることが好ましい。一方、多すぎると、ソフト相の占める割合が少なくなり、交換スプリング磁石を製造した場合の磁石特性が低下する恐れがある。このため、10atôm%以下であることが

好ましい。

【0054】Ndの一部をPrで置換した組成としてもよく、その場合の置換量は0.01~80atom%であることが好ましく、20~60atom%であることがより好ましい。この範囲であると、残留磁束密度の低下をほとんど生じることなく、保磁力および角型性を向上させることができるためである。

【0055】また、Ndの一部をDyまたはTbで置換した組成としてもよい。その場合の置換量は0.01~10atom%であることが好ましい。この範囲であると、残留磁束密度の著しい低下を生じることなく、保磁力を向上させることができると共に、温度特性の向上も可能となるからである。

【0056】Feの一部をCoで置換した組成としてもよく、その場合の置換量は0.01~30atom%であることが好ましく、5~20atom%であることがより好ましい。この範囲であると、保磁力、磁束密度の低下を生じることなく、温度特性の向上に加え、磁束密度自体も向上させることができる。なお、Feの一部をCoで置換した場合におけるハード相はNd₂(Fe-Co)₁₄Bとなり、ソフト相はFe-CoであることがX線回折、磁化の温度依存性の測定等より推定できた。

【0057】また、FeまたはCo(Fe-Coとして存在するCo)は、少量のAl、Mo、Zr、Ti、Sn、Cu、GaまたはNbの1種以上で置換してもよい。これらの元素を含有させることによって組織の微細化を図ることができ、保磁力増大が達成できるからである。しかしながら、含有しすぎると、磁気特性が逆に低下する原因となる。この観点からは、置換される元素量は、全組成に対して0.1~3atom%であることが好ましい。

【0058】Bの量が少なすぎると、本発明に係る磁石合金の製造が困難となる恐れがあり、4atom%以上であることが好ましい。一方、多すぎると、Nd₂Fe₁₄B、Nd₂(Fe-Co)₁₄B、 α -Fe、 α -(Fe-Co)以外の磁石特性の低下を誘起する他の相ができる恐れがある。このため、7atom%以下であることが好ましい。

【0059】Vは、結晶質の微細化、保磁力増大を図る観点から添加してもよいが、添加は必須ではなく、加えなくてもよい。ただし、加えすぎると磁気特性が逆に低下する原因となるため、2atom%以下であることが好ましい。

【0060】なお、本発明に係る磁石は合金材料であるため微量の不純物の混入は止むを得ないが、不純物量は少量であるほど好ましく、1質量%以下であることが好適である。

【0061】本発明に係る磁石合金の製造は、まず所望の組成になるように各金属元素を調整して配合し、真空中やアルゴン雰囲気下において高周波誘導溶解などの公

知手段によって溶解インゴットを作製する。これにストリップキャスト法などの急冷法を施すことによって、本発明にかかる希土類磁石合金(合金薄帯)を得ることができる。ストリップキャスト法は公知の装置を用いて行うことができ、特に特別な改良を加えなくともよい。ただし、改良を排除するものではない。希土類合金薄帯は、超急冷法を用いて得ることもできる。この場合も公知手段を用いて調製することができ、具体的には超急冷してアモルファスリボンを作製し、それを800℃以下の温度で結晶化することによって得ることができる。製造条件は使用する装置や合金の種類に応じて適宜設定する必要がある一義的に決められないが、本発明に係る磁石合金を調製する上では特に冷却速度に留意する必要がある。冷却速度が早すぎても(合金薄帯は薄くなる)遅すぎても(合金薄帯は厚くなる)結晶質サイズの粗大化や、合金薄帯の均一性が損なわれる恐れがある。冷却速度は、ストリップキャスト法によって得られる合金薄帯または超急冷法によって得られるアモルファスリボンの厚さと密接な関連があり、得られる合金薄帯の厚さが10~300 μ mになるように調製することが適切である。本発明にかかる微細な結晶質を有する希土類磁石合金の調整方法として、ストリップキャスト法と超急冷法とについて説明したが、本発明の希土類磁石合金の調製方法はこれらの限定されるものではなく、例えば、ガスアトマイズ等の方法によってアモルファス部を含有する粉末を作製し、それを熱処理することにより調製してもよいことは勿論である。

【0062】これらの方法によって、80nm以下の結晶質サイズを有する結晶質合金薄帯を得ることができる。また、マクロ的に観察すると等方性の薄帯であるが、0.1 μ m以上の部分異方化領域を形成することができる。

【0063】本発明に係る希土類磁石合金は、結晶質であることが発明の側面となっている。示差熱分析(DTA)も行ったが、明瞭な発熱ピークは見られなかった。

【0064】得た磁石合金の特性を改善するために以下に記載する水素処理を施すことも可能である。まず、磁石合金を0.1~1気圧の水素気流中にて、30分~2時間保持する。水素分圧の調整は、アルゴンなどの不活性ガスとの混合気体とすることによって実現してもよく、真空ポンプで減圧することによって実現してもよい。保持温度は、低すぎると水素処理が有効に機能しない恐れがあり、高すぎると結晶粒が粗大化する恐れがある。この観点から、保持温度は750~900℃が好ましい。保持温度は上記の範囲であれば、特に限定されるものではなく、上記範囲内で変化させることを排除するものではない。

【0065】次に、750~900℃の保持温度を保ったまま、水素分圧を1torr以下にして30分~1時

間さらに保持する。続いて、水素分圧を1 torr以下に保ったままで室温まで速やかに冷却する。このとき、冷却速度が遅すぎると水素を吸収してしまい、磁気特性に悪影響（異方性の低下等）が及ぶ恐れがある。このため、30分～1時間かけて行うことが好ましい。

【0066】このような一連の水素処理により、得られる磁石の異方性を高めることができる。また、容易に粉碎できるように改質でき、粉碎作業の生産性を高めることができる。なお、水素処理に用いることができる装置は、上記条件の下での処理を施しうるものであれば特に限定されるものではない。

【0067】続いて、上述した磁石合金を用いた異方性交換スプリング磁石の製造方法について説明する。

【0068】まず、本発明に係る希土類磁石合金を部分異方化領域の大きさ以下（1 μm 未満程度にまで粉碎することが一般的には好適である）に粉碎する。例えば、部分異方化領域の大きさが0.5 μm である場合には0.5 μm 以下の粒子に粉碎するとよい。粉碎する大きさの下限值については特に限定されるものではないが小さすぎると磁場配向させることが困難になり、また、微粉になるほど耐酸化性が劣るという弊害もある。このため微粒化の程度は0.1 μm 以上であることが好ましい。なお、as milled状態での粉末は一部アモルファス化しているようであることが、磁気測定、X線回折等から推定されている。

【0069】粉碎には各種粉碎機を用いることができ、ボールミル、サンドミル、振動ミル、ジェットミル、ピンミルなどが挙げられるが、サブミクロン粉碎の観点からはボールミルが好ましい。ボールミルは湿式でも乾式でもよいが、磁石粉末の酸化による磁気特性の劣化を防ぐために非酸化性の雰囲気下（アルゴン雰囲気下、窒素雰囲気下など）で行うことが好ましい。湿式ボールミルにはシクロヘキサンなどを用いることができる。また、粉碎された粉末の凝集を抑制するために分散剤を用いる必要がある。分散剤は磁場配向にも好適な効果を及ぼしうる。分散剤としては、湿式ではコハク酸を、乾式ではステアリン酸を用いることができる。

【0070】次に、得た磁石粉末を磁場配向することによって圧粉体を得る。磁場配向およびプレスに用いる装置は特に限定されるものではなく、各種公知の手段を用いることができる。例えば、磁場印加によって磁化容易軸方向を描いた状態で加圧成形することができる。加圧力は1～5トン/ cm^2 、印加する磁場は15～25 kOe程度が適当である。圧粉体は以下に説明する放電プラズマ焼結装置の型を用いて作製し、型に収まったままの状態、型ごと装置に運ばれ、圧力をかけながら放電プラズマ焼結することが作業の容易性の点からは好適である。

【0071】得られた圧粉体を放電プラズマ中で加圧焼結することによって、バルク化した異方性交換スプリ

ング磁石を得る。放電プラズマ加圧焼結を用いて、比較的低温で焼結することによって結晶質サイズの粗大化を抑制でき、得られる磁石の特性を優れたものとすることができる。放電プラズマ加圧焼結はイズミテック社製Model SPS-2040などの市販の装置を用いて行うことができ、製造する磁石や生産ラインに応じて適宜改良を施してもよい。

【0072】放電プラズマ加圧焼結の温度は、高すぎると結晶質サイズが粗大化し、磁石の保磁力が低下すると共に、交換結合が弱くなる恐れがある。このため、800℃以下で行うことが好ましく、700℃以下がより好ましい。一方、低すぎると緻密化が不充分となる恐れがあるため、600℃以上であることが好ましい。なお、交換結合の大きさはスプリングバックの大きさで認知することができる。加圧焼結はロータリーポンプ等を用いて減圧下で行うことが好ましく、処理温度までの昇温速度は15～25 K/min程度が適切である。処理保持時間は、使用する装置、温度、圧粉体の大きさなどに応じて適宜変更する必要がある一義的には定義できないが、0～5 min程度が一般的である。処理温度にて焼結後、炉冷する。降温速度は10～30 K/min程度が適切である。加圧力は1～10トン/ cm^2 程度が適切である。ただし、放電プラズマ加圧焼結は、結晶質サイズが粗大化し、異方性交換スプリング磁石の特性が劣化しない程度においては上記条件から外れてもよい。なお、放電プラズマ加圧焼結を用いた場合、酸素濃度の低いバルク磁石を製造することができ、磁石特性の向上を図ることができる。

【0073】上記方法によって得られるバルク化磁石は、粉碎方法の如何を問わず磁化曲線の第2、第3象限においてスプリングバック現象を示すものとなる。これは原料としてハード相とソフト相がそれぞれ60～80 nm以下の大きさで微細に混在している希土類磁石合金を用いたためである。

【0074】得られるバルク磁石の密度は、エネルギー積を高める観点からは原料である希土類磁石合金の真密度に近いことが好ましく、具体的には95%以上の真密度とすることが好ましい。

【0075】本発明の方法によって製造された交換スプリング磁石は、従来のNd-Fe-B焼結磁石に比べて磁石フラックスが大きいので小型化が図れる、温度特性が優れ減磁しにくい等の特性を有し、電気自動車用、HEV用の駆動モータに適用した場合に特に優れた効果を示す。Nd-Fe-B焼結磁石に比べて、磁石フラックスが大きい理由は、交換スプリング磁石がソフト相を多量に含んでいるためである。温度特性が優れる理由としては、保磁力機構が異なるためと考えられる。即ち、ハード相の結晶質サイズが小さく、ピンニング型に近い保磁力機構となっているため、温度安定性が増しているようである。

【0076】

【実施例】次に、本発明について実施例を挙げて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0077】＜実施例1＞

1. 合金薄帯の調製

超急冷装置を用いて、組成が $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{84}\text{B}_6$ である合金インゴットから幅3mm、厚さ $30\mu\text{m}$ のアモルファスリボンを作製し、これに熱処理を施すことによって合金薄帯を得た。超急冷の条件はロール周速度 20m/sec とし、熱処理条件は真空中 $650^\circ\text{C}\times 5\text{min}$ とした。

【0078】得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 70nm 以下、ソフト相が 70nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.3\sim 1.0\mu\text{m}$ であった。

【0079】この合金薄帯の優劣の判断は、以下の方法にしたがってVSMサンプルを調製し、 J_{s1} が1.1以上である場合を「優れている」と判定した。これは、 J_{s1} が1.1以上である材料を用いた場合に優れた異方性バルク交換スプリング磁石を調製できる点を考慮したものである。

【0080】2. VSMサンプルの調製および J_{s1} 評価方法

乳鉢を用いて、得られた合金薄帯を直径 $25\mu\text{m}$ 以下の粒子に粉碎し、 10kOe の磁場中において粉末をエポキシ樹脂で固定することにより、VSMサンプルを得た。最大磁場 16kOe の振動型磁力計（東英工業株式会社製VSM-5-15型）を用いて、磁場に平行な方向の磁化曲線と磁場に垂直な方向の磁化曲線とを測定し、上記式（1）で表される J_{s1} を評価したところ、1.7であった。結果を表1に示す。

【0081】＜実施例2＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_8\text{Fe}_{88}\text{B}_6$ とし、超急冷の条件をロール周速度 25m/sec とした以外は実施例1と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、そ

れぞれの大きさはハード相が 80nm 以下、ソフト相が 80nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.2\sim 0.6\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.55であった。また、保磁力は 5.8kOe であった。結果を表1に示す。

【0082】＜実施例3＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_6\text{Fe}_{88}\text{B}_6$ とし、超急冷の条件をロール周速度 30m/sec とした以外は実施例1と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 80nm 以下、ソフト相が 80nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.1\sim 0.5\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.4であった。結果を表1に示す。

【0083】＜実施例4＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_4\text{Fe}_{90}\text{B}_6$ とし、超急冷の条件をロール周速度 40m/sec とした以外は実施例1と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 80nm 以下、ソフト相が 80nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.1\sim 0.4\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.35であった。結果を表1に示す。

【0084】＜比較例1＞実施例1と同じ超急冷条件を採用した以外は実施例2と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 100nm 以下、ソフト相が 100nm 以下であった。また、TEMによって観察したが、部分異方化領域は確認できなかった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.05であった。結果を表1に示す。

【0085】

【表1】

	組成 (at.%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	J_{s1}
実施例1	$\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{84}\text{B}_6$	40-70	40-70	0.3-1.0	1.7
実施例2	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{88}\text{B}_6$	40-80	40-80	0.2-0.6	1.55
実施例3	$\text{Nd}_6\text{Fe}_{88}\text{B}_6$	40-80	40-80	0.1-0.5	1.4
実施例4	$\text{Nd}_4\text{Fe}_{90}\text{B}_6$	50-80	50-80	0.1-0.4	1.35
比較例1	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{88}\text{B}_6$	50-100	50-100		1.05

【0086】表1に示すように本発明に係る合金薄帯は、異方性交換スプリング磁石材料として優れているこ

とが示された。

【0087】＜実施例5＞合金インゴットの組成を Nd

$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_7$ とした以外は実施例2と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が80nm以下、ソフト相が80nm以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは0.2~0.6 μm であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.6であった。保磁力は5.8kOeであった。結果を表2に示す。

【0088】<実施例6>合金インゴットの組成を $\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_6\text{V}_1$ とした以外は実施例2と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が40nm以下、ソフト相が40nm以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは0.2~0.6 μm であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.6であった。保磁力は9.8kOeであった。結果を表2に示す。

<実施例7>合金インゴットの組成を $\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_4$ とした以外は実施例2と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が40nm以下、ソフト相が40nm以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方

化領域の大きさは0.2~0.6 μm であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.55であった。保磁力は3.4kOeであった。結果を表2に示す。

【0089】<実施例8>合金インゴットの組成を $\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_4\text{V}_2$ とした以外は実施例2と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が40nm以下、ソフト相が40nm以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは0.2~0.6 μm であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.6であった。保磁力は4.3kOeであった。結果を表2に示す。

【0090】<比較例2>合金インゴットの組成を $\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_3$ とした以外は実施例2と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が80nm以下、ソフト相が80nm以下であった。また、TEMによって観察したが、部分異方化領域は確認できなかった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.05であった。結果を表2に示す。

【0091】

【表2】

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	J_s
実施例2	$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_6$	40-80	40-80	0.2-0.6	1.55
実施例5	$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_7$	40-80	40-80	0.2-0.6	1.6
実施例6	$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_6\text{V}_1$	15-40	15-40	0.2-0.6	1.6
実施例7	$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_4$	15-40	15-40	0.2-0.6	1.55
実施例8	$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_4\text{V}_2$	15-40	15-40	0.2-0.6	1.6
比較例2	$\text{Nd}_{85}\text{Fe}_{15}\text{B}_3$	40-80	40-80	-	1.05

【0092】表2に示すように本発明に係る合金薄帯は、異方性交換スプリング磁石材料として優れていることが示された。また、Ti、V、Zr、Nbを添加することによって、保磁力向上に効果があることが示された。なお、ホウ素濃度を8atom%にした試料を調製しようとしたが、B化合物の析出と思われる現象が発現した。

【0093】<実施例9>合金インゴットの組成を $\text{Nd}_{90}\text{Fe}_{10}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、ストリップキャスト法により合金薄帯を調製した。ストリップキャスト法の条件は、固化する温度である900℃程度までの冷却速度を約2500℃/secとした。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が40nm以下、ソフト相が40nm以下であった。また、T

EM観察により調べた部分異方化領域の大きさは0.3~0.8 μm であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.7であった。結果を表3に示す。

【0094】<実施例10>合金インゴットの組成を $\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{75}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、ストリップキャストの条件を冷却速度約2200℃/secとした以外は実施例9と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が40nm以下、ソフト相が40nm以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは0.3~1.0 μm であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_s を評価したところ、1.8であった。結果を表3に示す。

【0095】＜実施例11＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_7\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、ストリップキャストの条件を冷却速度約 $3000^\circ\text{C}/\text{sec}$ とした以外は実施例9と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 50nm 以下、ソフト相が 50nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.2\sim0.6\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.6であった。結果を表3に示す。

【0096】＜実施例12＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、ストリップキャストの条件を冷却速度約 $4000^\circ\text{C}/\text{sec}$ とした以外は実施例9と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 50nm 以下、ソフト相が 50nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.1\sim0.5\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.5であった。結果を表3に示す。

【0097】＜実施例13＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_4\text{Fe}_{81}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、ストリップキャストの条件を冷却速度約 $5000^\circ\text{C}/\text{sec}$ とした以外は実施例9と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 60nm 以下、ソフト相が 60nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.1\sim0.5\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.45であった。結果を表3に示す。

【0098】＜比較例3＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とした以外は実施例9と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 200nm 以下、ソフト相が 200nm 以下であった。また、TEMによって観察したが、部分異方化領域は確認できなかった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.05であった。結果を表3に示す。

【0099】
【表3】

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	J_{s1}
実施例9	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	15-40	15-40	0.3-0.8	1.7
実施例10	$\text{Nd}_{10}\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	15-40	15-40	0.3-1.0	1.8
実施例11	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	25-50	25-50	0.2-0.6	1.6
実施例12	$\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	30-50	30-50	0.1-0.5	1.5
実施例13	$\text{Nd}_4\text{Fe}_{81}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	40-60	40-60	0.1-0.5	1.45
比較例3	$\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	100-200	100-200	-	1.05

【0100】表3に示すように本発明に係る合金薄帯は、異方性交換スプリング磁石材料として優れていることが示された。また、Nd量が少ないほど、結晶質サイズが大きくなる傾向を示した。

【0101】＜実施例14＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_7\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、超急冷の条件をロール周速度 $30\text{m}/\text{sec}$ とした以外は実施例1と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 50nm 以下、ソフト相が 50nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.2\sim0.6\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.6であった。結果を表4に示す。

【0102】＜実施例15＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とし、超急冷の条件をロール周速度 $40\text{m}/\text{sec}$ とした以外は実施例1と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 50nm 以下、ソフト相が 50nm 以下であった。また、TEM観察により調べた部分異方化領域の大きさは $0.1\sim0.5\mu\text{m}$ であった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.5であった。結果を表4に示す。

【0103】＜比較例4＞合金インゴットの組成を $\text{Nd}_6\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$ とした以外は実施例14と同様にして合金薄帯を得た。得られた合金薄帯の切断面をSEMで観察したところ、合金薄帯中にはハード相とソフト相とが混在し、それぞれの大きさはハード相が 100nm 以下、ソフト相が 100nm 以下であった。また、TEMによって観察したが、部分異方化領域は確認できなかった。実施例1と同様の方法でVSMサンプルを作成し J_{s1} を評価したところ、1.05であった。結果を表3に示す。

J_{s1} を評価したところ、1.05であった。結果を表4に示す。

【0104】
【表4】

	組成 (atom%)	ハード相 大きさ (nm)	ソフト相 大きさ (nm)	部分異方化領域 大きさ (μm)	J_{s1}
実施例14	$\text{Nd}_7\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	25-50	25-50	0.2-0.6	1.6
実施例15	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	30-50	30-50	0.1-0.6	1.5
比較例4	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{79}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	60-100	60-100	-	1.05

【0105】表4に示すように本発明に係る合金薄帯は、異方性交換スプリング磁石材料として優れていることが示された。

【0106】＜実施例16＞実施例9に記載の方法で得られた合金薄帯を湿式ボールミル（Ar雰囲気下、シクロヘキサン）で粉砕した。分散剤としてポリブテニルコハク酸イミドテトラエチレンペンタミン（分子量1300）を使用した。この分散剤は若干の鉱油を含むものであった。粉砕後の粉末の大きさをSEMで確認したところ1 μm 未満となっており、1 μm 以上の粒子は確認できなかった。この粉末を20kOeの磁場中にて配向させ、2トン/ cm^2 で加圧して圧粉体を得た。

【0107】この圧粉体を、放電プラズマ焼結装置（イズミテック株式会社製；Model SPS-2040）を用いて、加圧力9トン/ cm^2 、雰囲気温度650℃で、3分間放電プラズマ焼結してバルク交換スプリング

磁石を得た。型には非磁性のWC型を使用し、焼結はロータリーポンプによる減圧下で行った。また、昇温速度は20K/minとした。得られたバルク交換スプリング磁石の形状は、10mm×10mm×7mmであり、磁石の密度は真密度に到達していた。磁石をTEM観察したところ結晶質サイズは15～40nmであり、電子線の回折パターンより、ハード相の向きが揃っていることが確認できた。また、磁石の断面のSEM観察を試みたところ、元の粉末外形の識別がほとんどできないくらいの組織形態をなしていた。

【0108】得られたバルク交換スプリング磁石の磁化曲線を最大印加磁場20kOeの（直流）BHトレースにて測定した。下記式（3）：

【0109】
【数4】

$$J_{s2} = \frac{20\text{kOeにおける磁場配向方向磁化}}{20\text{kOeにおける磁場垂直方向磁化}} \quad (3)$$

【0110】で表される J_{s2} を評価したところ1.8であり、放電プラズマ装置によるバルク化によって、実施例9の合金薄帯よりも異方性が向上していた。また、磁化曲線からエネルギー積を算出したところ25MGOeであった。結果を表5に示す。

【0111】＜実施例17＞焼結時の加圧力を8トン/ cm^2 とした以外は実施例16と同様にしてバルク交換スプリング磁石を得た。磁石の密度は真密度の95%であった。 J_{s2} を評価したところ、1.8であり、エネルギー積は20MGOeであった。結果を表5に示す。

【0112】＜実施例18＞焼結時の加圧力を7トン／

cm^2 とした以外は実施例16と同様にしてバルク交換スプリング磁石を得た。磁石の密度は真密度の90%であった。 J_{s2} を評価したところ、1.8であり、エネルギー積は18MGOeであった。結果を表5に示す。

【0113】＜実施例19＞焼結時の温度を810℃とした以外は実施例16と同様にしてバルク交換スプリング磁石を得た。磁石の密度は真密度に達しており、 J_{s2} は1.5、エネルギー積は15MGOeであった。結果を表5に示す。

【0114】
【表5】

	組成 (atom%)	J_{s2}	BHmax (MGOe)
実施例16	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	1.8	25
実施例17	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	1.8	20
実施例18	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	1.8	18
実施例19	$\text{Nd}_8\text{Fe}_{78}\text{Co}_8\text{B}_6\text{V}_1$	1.5	15

【0115】保磁力は実施例16、17、18ではいずれも7.0kOe程度の値であり、実施例18では5.0kOeであった。表5に示すように、磁石密度は、真密度の95%以上をすることが好ましく、放電プラズマ装置での焼結温度は800℃以上が好ましいことが示唆された。

【0116】＜実施例20＞実施例16の交換スプリン

グ磁石を表面磁石型モータ（ステータ12極、ロータ8極）に適用した。図2は適用された集中巻の表面磁石型モータの1/4断面図である。外側はアルミケース11、その内側がステータ（内径52mm、外径108mm；電磁鋼板の積層体）12であり、1-2がu相、3-4がv相、5-6がw相巻線である。また、ステータ12は電磁鋼板の積層体とした。ロータ鉄14上には図

示するような形状の磁石13を配置した。なお、ロータの最外径は50.7mmとし、ステータおよびロータの積厚は79.8mmであった。

【0117】モータの性能は、最大定格2kW、耐熱限界160℃であった。本磁石の保磁力は7.2kOeであった。一方、従来のNdFeB焼結磁石を用いた場合、同等の耐熱性を確保するには保磁力19.8kOe程度以上の磁石を使用する必要がある。即ち、本発明の磁石をモータに適用した場合、熱設計において優れた特性を発現することが示された。

【図面の簡単な説明】

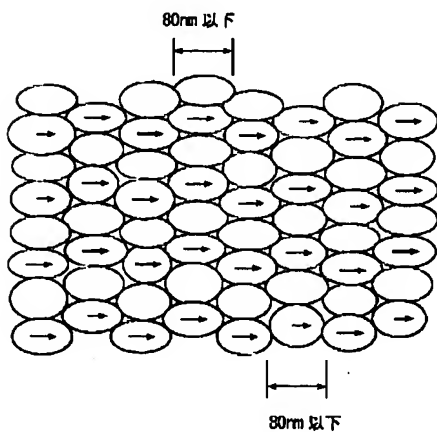
【図1】 本発明に係る磁石合金の概念図である。

【図2】 本発明の交換スプリング磁石が適用された集中巻の表面磁石型モータの1/4断面図である。

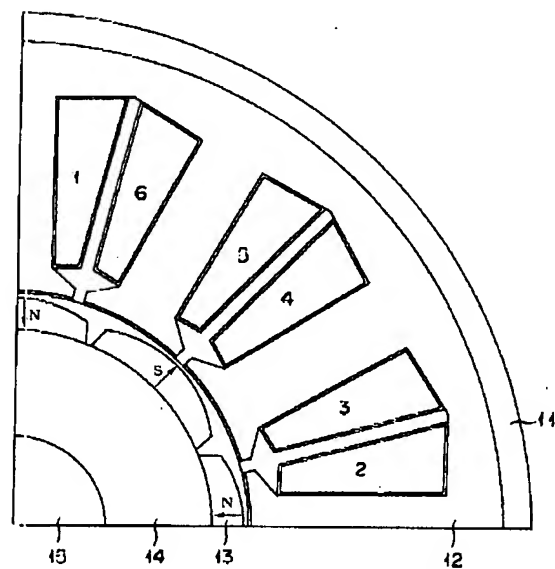
【符号の説明】

- 11 アルミケース
- 12 ステータ
- 13 磁石
- 14 ロータ鉄
- 15 軸

【図1】



【図2】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4K018 AA27 BA18 CA04 EA21
5E040 AA04 AA19 BD01 HB06 NN06
5E062 CC02 CD04 CE04 CF05 CG02